

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 60-176203

(43)Date of publication of application : 10.09.1985

(51)Int.Cl.

H01F 1/08
C22C 38/00

(21)Application number : 59-031740

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO
LTD

(22)Date of filing : 22.02.1984

(72)Inventor : MATSUURA YUTAKA
FUJIMURA SETSUO
SAGAWA MASATO
YAMAMOTO HITOSHI

(54) MATERIAL FOR SINTERED MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To enhance the coercive force of the permanent magnet material having rare earth, boron and iron as main ingredients by a method wherein R, B and Fe of specific compositional ratio are used as main ingredients, and the specific quantity of one or more kinds of elements selected from Te, Zn and Se are contained as additive elements.

CONSTITUTION: R of 8W30atom% (provided that R consists of one or more kinds of rare earth elements containing Y), B of 2W28atom% and Fe of 65W82atom% are used as main ingredients, and one or more kinds of elements, (provided that the maximum value of the upper limits of the additive elements is considered as the upper limit value of the total additive elements when two or more kinds of additive elements are contained) selected from Te of 2.0atom% or below, Zn of 2.5atom% or below and Se of 2.0atom% or below, are used as additive elements. When R is less than 8atom%, high magnetic characteristics, especially high coercive force, can not be obtained and when it exceeds 30atom%, industrial handling and manufacture can not be performed, and a permanent magnet of excellent characteristics can not be obtained by the lowering of residual magnetic flux density. Also, if B is in 2atom% or less, high coercive force can not be obtained, and if it exceeds 28atom%, the residual magnetic flux density is lowered.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-176203

⑬ Int. Cl.⁴

H 01 F 1/08
C 22 C 38/00

識別記号

庁内整理番号

7354-5E
7147-4K

⑭ 公開 昭和60年(1985)9月10日

審査請求 未請求 発明の数 4 (全5頁)

⑮ 発明の名称 焼結磁石材料

⑯ 特 願 昭59-31740

⑰ 出 願 昭59(1984)2月22日

⑱ 発 明 者 松 浦 裕 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
⑱ 発 明 者 藤 村 節 夫 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
⑱ 発 明 者 佐 川 真 人 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
⑱ 発 明 者 山 本 日 登 志 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
⑲ 出 願 人 住友特殊金属株式会社 大阪市東区北浜5丁目22番地
⑳ 代 理 人 弁理士 押田 良久

明 細 書

1. 発明の名称

焼結磁石材料

2. 特許請求の範囲

1 R 0原子%~30原子% (但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、

B 2原子%~28原子%、

Fe 65原子%~82原子%を主成分とし、

添加元素として、

Te 2.0原子%以下、Zn 2.5原子%以下、

Se 2.0原子%以下、

のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值とする) を含有したことを特徴とする焼結磁石材料。

2 R 0原子%~30原子% (但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、

B 2原子%~28原子%、

Co 2.5原子%未満、

Fe 65原子%~82原子%、を主成分とし、

添加元素として、

Te 2.0原子%以下、Zn 2.5原子%以下、

Se 2.0原子%以下、

のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值とする) を含有したことを特徴とする焼結磁石材料。

3 R 0原子%~30原子% (但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、

B 2原子%~28原子%、

Fe 65原子%~82原子%を主成分とし、

添加元素として、

Te 2.0原子%以下、Zn 2.5原子%以下、

Se 2.0原子%以下、

のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值とする) を含有し、

さらに下記の添加元素のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值

とする)を含有することを特徴とする焼結磁石材料。

Ti 4.5原子%以下、Nb 8.0原子%以下、
Bi 5.0原子%以下、V 9.5原子%以下、
Nb 12.5原子%以下、Ta 10.5原子%以下、
Cr 8.5原子%以下、Mo 9.5原子%以下、
W 9.5原子%以下、Ru 8.0原子%以下、
Al 9.5原子%以下、Sb 2.5原子%以下、
Co 7.0原子%以下、Sn 3.5原子%以下、
Zr 5.5原子%以下、Hf 5.5原子%以下、

4 R 8原子%~30原子% (但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、

B 2原子%~28原子%、

Co 25原子%未満、

Fe 65原子%~82原子%、を主成分とし、
添加元素として、

Te 2.0原子%以下、Zn 2.5原子%以下、

Se 2.0原子%以下、

のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち

最大値を添加総量の上限值とする)を含有し、さらに下記の添加元素のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值とする)を含有することを特徴とする焼結磁石材料。

Ti 4.5原子%以下、Nb 8.0原子%以下、
Bi 5.0原子%以下、V 9.5原子%以下、
Nb 12.5原子%以下、Ta 10.5原子%以下、
Cr 8.5原子%以下、Mo 9.5原子%以下、
W 9.5原子%以下、Ru 8.0原子%以下、
Al 9.5原子%以下、Sb 2.5原子%以下、
Co 7.0原子%以下、Sn 3.5原子%以下、
Zr 5.5原子%以下、Hf 5.5原子%以下、

3. 発明の詳細な説明

この発明は、R (RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、B、Feを主成分とする永久磁石に係り、添加元素により保磁力を向上させた希土類・鉄・ボロン系焼結磁石材料に関する。

永久磁石材料は、一般家庭の各種電気製品から、

大型コンピュータの周辺端末器まで、幅広い分野で使用される極めて重要な電気・電子材料の一つである。近年の電気・電子機器の小形化、高効率化の要求にともない、永久磁石材料は益々高性能化が求められるようになった。

現在の代表的な永久磁石材料は、アルニコ、ハードフェライトおよび希土類コバルト磁石である。近年のコバルトの原料事情の不安定化に伴ない、コバルトを20~30wt%含むアルニコ磁石の需要は減り、鉄の酸化物を主成分とする安価なハードフェライトが磁石材料の主流を占めるようになった。一方、希土類コバルト磁石はコバルトを50~60wt%も含むうえ、希土類磁石中にあまり含まれていないSnを使用するため大変高価であるが、他の磁石に比べて、磁気特性が格段に高いため、主として小型で付加価値の高い磁気回路に多用されるようになった。

そこで、本発明者は先に、高価なSnやCoを含有しない新しい高性能永久磁石としてFe-B-R系 (RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)

永久磁石を提案した (特開昭57-145072号)。この永久磁石は、RとしてNbやPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を用い、Feを主成分として25MG0e以上の極めて高いエネルギー積を示す、すぐれた永久磁石である。

この発明は、上述した新規な希土類・ボロン・鉄を主成分とする永久磁石材料の保磁力を改善することを目的としている。

すなわち、この発明は、

R 8原子%~30原子%

(但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、

B 2原子%~28原子%、

Fe 65原子%~82原子%を主成分とし、

添加元素(A)として、

Te 2.0原子%以下、Zn 2.5原子%以下、

Se 2.0原子%以下、

のうち少なくとも1種 (但し、2種以上の添加元素を含有する場合は、当該添加元素の上限のうち最大値を添加総量の上限值とする)を含有したこ

とを特徴とする焼結磁石材料であり、また、必須のFeの一部にかえて25原子%未満のCoを含有および/または下記添加元素(M)のうち少なくとも1種を含有することを特徴とする永久磁石材料である。

Ti	4.5原子%以下、	Ni	8.0原子%以下、
Bi	5.0原子%以下、	V	9.5原子%以下、
Nb	12.5原子%以下、	Te	10.5原子%以下、
Cr	8.5原子%以下、	Mo	9.5原子%以下、
W	9.5原子%以下、	Mn	8.0原子%以下、
Al	9.5原子%以下、	Sb	2.5原子%以下、
Co	7.0原子%以下、	Sn	3.5原子%以下、
Zr	5.5原子%以下、	Hf	5.5原子%以下、

添加元素A及びMは、上述のR-B-Fe系永久磁石に対してその保磁力を改善する効果があり、永久磁石として実用上十分な保磁力を示し、特に添加元素Aは減磁曲線の角型性を著しく向上させ、好ましい磁線においては、Sm-Co系永久磁石と同等以上の保磁力を示す。この発明による永久磁石は保磁力が強く、逆磁界や強い反磁界の加えられ

る箇所への用途だけでなく、高温環境下での用途にも適した永久磁石である。

従って、この発明の組成とした焼結磁石材料は、RとしてNdやPrを中心とする貧鉄的に豊富な軽希土類を主に用い、Feを主成分とすることにより、25MG奥以上の極めて高いエネルギー積並びに、高残留磁束密度、高保持力を有し、かつすぐれた残留磁束密度の温度特性を有する永久磁石を安価に得ることができる。

以下に、この発明による永久磁石の組成限定理由を説明する。

この発明の永久磁石に用いる希土類元素Rは、イットリウム(Y)を包含し軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素であり、これらのうち少なくとも1種、好ましくはNd、Pr等の軽希土類を主体として、あるいはNd、Pr等との混合物を用いる。

又、通例Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物(ミッシュメタル、ジウム等)を入手上の便宜等の理由により用いることが

でき、Sm、Y、La、Ce、Gd、等は他のR、特にNd、Pr等との混合物として用いることができる。

なお、このRは純希土類元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差支えない。

R(Yを含む希土類元素のうち少なくとも1種)は、新規な上記系永久磁石における、必須元素であって、8原子%未満では、高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を超えると、工業的取扱や製造が困難であり、残留磁束密度(B_r)が低下して、すぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、希土類元素は、8原子%~30原子%の範囲とする。

Bは、新規な上記系永久磁石における、必須元素であって、2原子%未満では、高い保磁力(iH_c)は得られず、28原子%を超えると、残留磁束密度(B_r)が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは、2原子%~28原子%の範囲とする。

Coは、本系永久磁石の温度特性を改善するため、Feの一部を置換するもので、置換量の増大に伴ない生成合金のキュリー点を上昇せしめ温度特性を改善できるが、Co置換量の増大に伴ないキュリー点はRによらず急激に増大するため、Co置換量に依じて任意の温度特性の改善が得られる。Coの含有量はFeの下限値により規定され、25原子%未満では、他の磁気特性に悪影響を与えることなくキュリー点を増大させ、例えば5原子%以上でB_rの温度係数約0.1%/℃となり、また、0.1~1原子%程度の少量であっても有効である。

添加元素A及びMは、R-B-Fe系永久磁石に対してその保磁力を改善する効果があるため添加する。しかし、添加元素Mの添加に伴ない残留磁束密度(B_r)の低下が招来されるため、従来のハードフェライト磁石の残留磁束密度と同等以上となる範囲でA及びMの添加が望ましい。

したがって、添加元素Aは、Te 2.0原子%、Zn 2.5原子%、Se 2.0原子%を各々越えると残留磁束密度および保磁力が低下するの好まし

くない。

また、添加元素MのTi, Ni, Bi, V, Nb, Ta, Cr, Mo, W, Mn, Al, Sb, Co, Sn, Zr, の各元素の添加上限値は、残留磁束密度が4KG以上となる範囲とし、それぞれ、

Ti 4.5原子%以下、Nb 8.0原子%以下、

Bi 5.0原子%以下、V 9.5原子%以下、

Nb 12.5原子%以下、Ta 10.5原子%以下、

Cr 8.5原子%以下、Mo 9.5原子%以下、

W 9.5原子%以下、Mn 8.0原子%以下、

Al 9.5原子%以下、Sb 2.5原子%以下、

Co 7.0原子%以下、Sn 3.5原子%以下、

Zr 5.5原子%以下、Hf 5.5原子%以下、

また、添加元素A及びMにおいて、2種以上を含有する場合は、残留磁束密度が4KG以上を有するためには、当該元素の上限のうち、最大値以下とする必要がある。

Feは、新規な上記系永久磁石において、必須元素であり、上記成分を含有した残余を占める。しかし、85原子%未満では残留磁束密度(B_r)

が低下し、82原子%を超えると、高い保磁力が得られないので、Feは85原子%～82原子%の範囲とする。

また、この発明による永久磁石は、R, B, Feの他、工業的生産上不可避的不純物の存在を許容でき、

4.0原子%以下のC、3.5原子%以下のP、

2.5原子%以下のS、3.5原子%以下のCu、

4.0原子%以下のCa、4.0原子%以下のMg、

2.0原子%以下のO、5.0原子%以下のSi、の

含有であればハードフェライトと同等以上の特性が得られ、永久磁石の製造性改善、低価格化が可能である。

結晶相は主相が正方晶であることが、微観で均一な合金粉末より、すぐれた磁気特性を有する焼結永久磁石を製作するのに不可欠である。

この発明による永久磁石は、保磁力H_c ≥ 1 KOe、残留磁束密度B_r > 4KG、を示し、最大エネルギー積(BH)_{max}はハードフェライトと同等以上となり、最も好ましい組成範囲では、

(BH)_{max} ≥ 10MG Oeを示し、最大値は25MG Oe以上に達する。

この発明において、高い残留磁束密度と高い保磁力を共に有するすぐれた永久磁石を得るためには、稀土土類元素が全部R中の50%以上であり、R11原子%～24原子%、B3原子%～27原子%、Fe68原子%～80原子%が好ましい。

以下に、この発明による実施例を示しその効果を明らかにする。

実施例1

出発原料として、純度99.9%の電解鉄、B19.4%を含有し残余はFe及びAl, Si, C等の不純物からなるフェロボロン合金、純度99.7%以上のNb、を使用し、添加元素として、純度99.9%のCo、純度99%のZn, Sb, Ta、純度98%のW, Zrとして75.5%のZrを含むプエロツルゴニウム及びNbとして87.6%のNbを含むフェロニオブを使用し、第1表の各組成となるように秤量したのち、これらを高周波溶解し、その後水冷坩堝型に鑄造した。

その後インゴットを、スタンプミルにより40メ

ッシュスルーまでに粗粉碎し、次にボールミルにより3時間粉碎し、粒度2～5μmの微粉末を得た。

この微粉末を金型に装入し、15KOeの磁界中で配向し、1.2t/cm²の圧力で成形した。

得られた成形体を、1000℃～1200℃、2時間、Ar中、の条件で焼結し、その後放冷し、さらに、650℃、2時間の時効処理を施してこの発明による永久磁石を製作した。

作製した永久磁石の磁気特性を測定したところ、第1表に示す結果を得た。第1表中、試料Nb14～17はこの発明の組成外及び比較のRBF₀系であり、添加元素の効果により磁気特性が向上したことが分る。

以下余白

第1表

試料No	組成(原子%)	Br KG	iHc kOe	(BH) max MG0e
本発明				
1	Nd15Fe76B 8Zn 1.0	12.50	12.50	37.0
2	Nd15Fe74.5B10 Te 0.5	11.8	10.8	32.5
3	Nd17Fe69.5B13Se 0.5	9.8	10.7	21.5
4	Nd13Pr 3Fe74B 8Zn 0.5 Te 0.5	12.0	11.8	34.0
5	Nd15Co 2Fe73B 8Zn 0.5Se 0.5	11.6	11.5	30.5
6	Nd15Fe70B14Se 1.0	9.3	11.7	20.0
7	Nd18Fe70.5B10Zn 0.5 Te 0.5Se 0.5	10.8	10.9	25.5
8	Nd17Fe73B 8Zn 2.0	11.5	10.9	31.0
9	Nd15Fe66Co10B 8Zn 0.5 Te 0.5	12.4	11.8	35.5
10	Nd15Fe71B13Nb 0.5Zn 0.5	9.2	10.8	20.3
11	Nd18Fe73B 8W 0.5 Te 0.5	12.2	10.3	36.0
12	Nd15Fe71Co 5B 8Nb 0.5Zn 0.5	12.3	10.1	36.5
13	Nd17Fe62Co10B10W 0.5Se 0.5	11.5	9.8	31.5
比較例				
14	Nd13Fe73B10 Te 4.0	10.8	1.5	4.2
15	Nd15Fe71B 8Zr 6.0	9.6	0.8	3.5
16	Nd16Fe70B 9Se 5.0	8.8	0.7	4.0
17	Nd15Fe77B 8	12.6	4.5	32.0

以下余白

特許法第17条の2の規定による補正の掲載

平 3. 6. 10 発行

昭和 59 年特許願第 31740 号 (特開昭
60-176203 号, 昭和 60 年 9 月 10 日
発行 公開特許公報 60-1763 号掲載) につ
いては特許法第17条の2の規定による補正があっ
たので下記のとおり掲載する。 7 (2)

Int. Cl. 8	識別 記号	庁内整理番号
H01F 1/08		7303-5E
C22C 38/00		7047-4K

平成 3. 6. 10 発行
手続補正書

平成 3 年 2 月 18 日

特許庁長官 殿

1. 特許出願の表示

昭和59年 特許願 第31740号

2. 発明の名称

焼結珪石材料

3. 補正をする者

事件との関係

出願人

住所 大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(平成1年2月13日行政区画変更)

スミトモテクノシステムズ

名称 住友特殊金属株式会社

4. 代理人

居所 東京都中央区銀座3-3-12銀座ビル

Tel 03-661-0274

氏名 (7390) 弁理士

押 田 良 久

5. 補正命令の日付

自発

6. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の欄

7. 補正の内容

(1) 明細書第11頁3行の「Zr.」を「Zr-Hf.」と
補正する。

